

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-026156

(43)Date of publication of application : 29.01.1999

(51)Int.Cl.

H05B 33/04

H05B 33/22

(21)Application number : 09-173979

(71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO LTD

(22)Date of filing : 30.06.1997

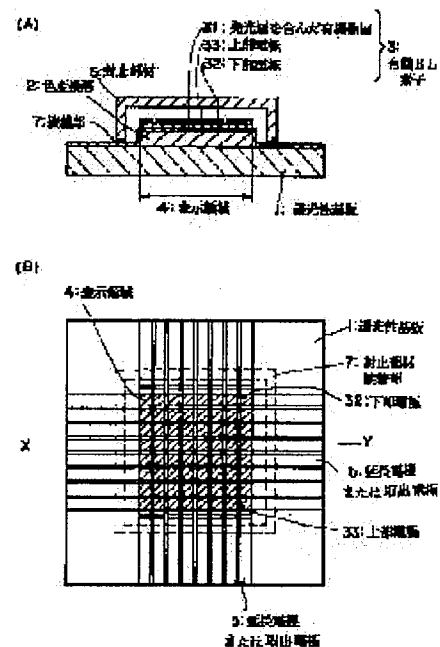
(72)Inventor : SAKAEDA NOBORU

## (54) ORGANIC EL MULTICOLOR LIGHT EMITTING DISPLAY DEVICE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic EL multicolor light emitting display device which is hardly influenced by moisture and oxygen and is excellent in preservation stability.

SOLUTION: In this device, a display area 4 is formed by successively laminating at least a color converting layer 2 and an organic EL element 3 sandwiching an organic substance layer 31 containing a light emitting layer between two electrodes of a lower electrode 32 and an upper electrode 33 on a light transmissive base board 1. In this case, a takeout electrode 5 formed by being connected to the electrode or an extension electrode formed by extending the electrode, is arranged on a periphery of the display area 4, and a sealing member 6 is arranged so as to cover the display area 4, and the sealing member 6 is also adhered to a surface of the extension electrode or the takeout electrode 5 and the light transmissive base board 1.



(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-26156

(43) 公開日 平成11年(1999) 1月29日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

H 0 5 B 33/04

33/22

識別記号

F I

H 0 5 B 33/04

33/22

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 22 頁)

(21) 出願番号 特願平9-173979

(22) 出願日 平成9年(1997) 6月30日

(71) 出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72) 発明者 柴田 暢

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

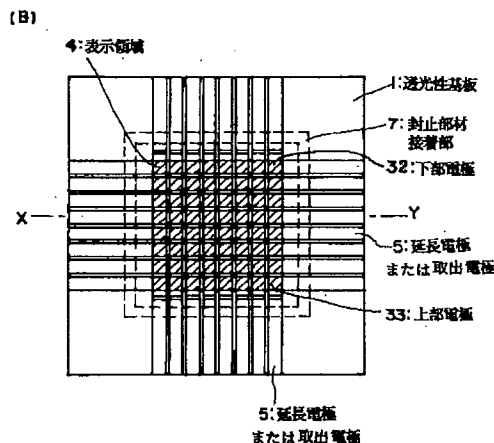
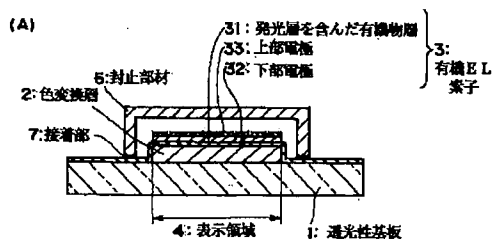
(74) 代理人 弁理士 渡辺 喜平 (外1名)

(54) 【発明の名称】 有機EL多色発光表示装置

(57) 【要約】

【課題】 水分や酸素の影響を受けにくく、保存安定性に優れた有機EL多色発光表示装置を提供する。

【解決手段】 透光性基板1上に、少なくとも色変換層2と、発光層を含んだ有機物層31を下部電極32および上部電極33の二つの電極間に挟持した有機EL素子3とを順次積層して、表示領域4を形成してなる有機EL多色発光表示装置において、表示領域4の周辺に、前記電極を延長して形成した延長電極または前記電極と接続して形成した取出電極5を配設してなるとともに、表示領域4を被覆するように封止部材6を配設してなり、かつ延長電極または取出電極5、および透光性基板1の表面に前記封止部材6を接着してなることを特徴とする有機EL多色発光表示装置。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 透光性基板上に、少なくとも色変換層と、発光層を含んだ有機物層を下部電極および上部電極の二つの電極間に挟持した有機EL素子とを順次積層して、表示領域を形成してなる有機EL多色発光表示装置において、表示領域の周辺に、前記電極を延長して形成した延長電極または前記電極と接続して形成した取出電極を配設してなるとともに、表示領域を被覆するように封止部材を配設してなり、かつ延長電極または取出電極、および透光性基板の表面に前記封止部材を接着してなることを特徴とする有機EL多色発光表示装置。

【請求項2】 透光性基板上に、少なくとも色変換層と、これを被覆した平坦化層と、発光層を含んだ有機物層を下部電極および上部電極の二つの電極間に挟持した有機EL素子とを順次積層して、表示領域を形成してなる有機EL多色発光表示装置において、表示領域の周辺に、前記電極を延長して形成した延長電極または前記電極と接続して形成した取出電極を配設してなるとともに、表示領域を被覆するように封止部材を配設してなり、かつ延長電極または取出電極、および透光性基板の表面に前記封止部材を接着してなることを特徴とする有機EL多色発光表示装置。

【請求項3】 透光性基板上に、少なくとも色変換層と、これを被覆した平坦化層と、発光層を含んだ有機物層を下部電極および上部電極の二つの電極間に挟持した有機EL素子とを順次積層して、表示領域を形成してなる有機EL多色発光表示装置において、表示領域の周辺に、前記電極を延長して形成した延長電極または前記電極と接続して形成した取出電極を配設してなるとともに、表示領域を被覆するように封止部材を配設してなり、かつ延長電極または取出電極、および平坦化層の表面に前記封止部材を接着してなることを特徴とする有機EL多色発光表示装置。

【請求項4】 前記平坦化層の水分含有量が、1.0重量%以下、および/または水蒸気または酸素のガス透過係数が、それぞれ $10^{-12}$  cc・cm/cm<sup>2</sup>・s・cmHg以下である請求項2または3記載の有機EL多色発光表示装置。

【請求項5】 前記平坦化層の周縁部が、周縁側に向けて漸次傾斜してなる請求項2～4のいずれか1項記載の有機EL多色発光表示装置。

【請求項6】 平坦化層が、無機酸化物および/または無機酸化物層を含む請求項2～5のいずれか1項記載の有機EL多色発光表示装置。

【請求項7】 前記無機酸化物が、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、および酸化チタンからなる群から選ばれる一種以上の化合物である請求項6記載の有機EL多色発光表示装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、有機EL多色発光表示装置に関する。さらに詳しくは、壁かけTV、ノートパソコン用ディスプレイ、車載TV、カーナビ用、携帯電話、ポケットベルなど携帯情報機器ディスプレイ等の民生用または産業用の表示機、カラーディスプレイ等に好適に用いられる有機EL多色発光表示装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】電子ディスプレイデバイスは、一般にman-machine interfaceといわれるように、各種装置(machine)からの各種情報を視覚を通して人間(man)に伝達する電子デバイスであって、人間と装置とを結ぶ重要な橋渡しの役割(interface)を担っている。この電子デバイスには、発光形と受光形とがあり、発光形としては、例えばCRT(陰極線管)、PDP(プラズマディスプレイ)、ELD(エレクトロルミネッセンスディスプレイ)、VFD(蛍光表示管)、LED(発光ダイオード)などが挙げられる。一方、受光形としては、例えばLCD(液晶ディスプレイ)、ECD(エレクトロケミカルディスプレイ)、EPID(電気泳動ディスプレイ)、SPD(分散粒子配向形ディスプレイ)、TBD(着色粒子回転形ディスプレイ)、PLZT(透明強誘電性PLZT[(Pb, La)(Zr, Ti)O<sub>3</sub>])セラミックスディスプレイ)などが挙げられる。

【0003】ここで、電子ディスプレイデバイスのフルカラー化の方法としては、多色(例えば、赤、青、緑の三原色)の発光部分を平面的に分離配置して、それぞれ発光させる方法や、単一色の光を複数の異なる色変換層(例えばカラーフィルタまたは蛍光体)が受光して、分解または変換して異なる発光をさせる方法が挙げられる。

【0004】ここで、ELDは、自己発光のため、視認性が高く、また完全固体であるため、耐衝撃性に優れるという特徴を有しており、現在無機や有機化合物を発光層に用いた様々なELDの開発が進められている。中でも有機ELD(または有機EL素子)は、有機化合物を二つの電極に挟んでなるディスプレイであり、有機化合物の種類が豊富で様々な色の光を高効率、高輝度で発するディスプレイとして期待が大きい。

【0005】しかしながら、現在有機EL素子の発光部分を平面的に分離配置して、異なる色の光を発光させて多色化するには、それぞれの色の発光材料を開発する必要があり、かつ、材料自体が有機化合物であるため、平面的に分離配置するプロセス(例えばフォトリソグラフィ法)に対する耐性が乏しいという問題があった。そこで、有機EL素子の単一色の光を色変換層にて分解または変換する方法が、発光層として単一色のみを設ければよく、簡便な点では優れていた。

【0006】なお、ここで色変換層としてカラーフィル

タを用いる場合、その機能上、光を分解またはカットして取り出すので、光のロスが著しい。例えば、白色の発光を三原色（赤、緑、青）に分解する場合は、白色の輝度が高々3分の1に減少してしまう。一方、色変換層が蛍光体の場合には、光を吸収してより長波長（エネルギーの小さい）の蛍光に変換する機能を有しているが、例えば蛍光体の光の吸収率が80%として、80%の蛍光収率で蛍光を発するならば、64%の長波長の光に変換できることになる。実際そのような蛍光体は存在している。従って、色変換層としては、蛍光体層を含むものが、光の効率のよい利用の意味で好ましい。

【0007】そこで、例えば有機EL素子の単一色の光を蛍光体層を含む複数の異なる色変換層で多色化する構成としては、特開平3-152897号公報及び特開平5-258860号公報で開示されている。特に特開平5-258860号公報では、有機EL素子の発光が受光できるように蛍光媒体を配置した多色発光装置を開示している。

【0008】前述のように、有機EL素子は、発光層を含む有機化合物（層）を二つの電極間に挟持された構造からなっているが、二つの電極から注入された正孔と電子が主に発光層で再結合し、その際発光層中の有機化合物が励起され、それが基底状態に失活する時に放出される蛍光が発光として観測される。しかし、その構造上、有機EL素子は、素子周辺から侵入する水分、酸素に対して非常に敏感で、その影響を受け易いものである。特に、電子注入性の電極（陰極）は仕事関数が小さいので、容易に水分や酸素によって酸化されやすく、非電子注入領域を形成するので、発光面の中に非発光領域（黒点、ダークスポット）を生じさせ、表示性能を著しく低下させる。また、発光層を含む有機物層の中には、水分や酸素で劣化されやすい有機化合物が存在し、発光時の発熱によっても一層劣化が促進され、表示性能の低下する場合もある。従って、有機EL素子を取扱う場合には、素子周辺の水分や酸素を遮断する手段が必要であり、通常は素子周辺を封止することによって水分や酸素の遮断を図っている。このような、有機EL素子のみを封止する方法は、これまでに多くの例が開示されている。

【0009】ところが、前記特開平5-258860号公報に記載された多色発光装置には、封止に関して一切開示されていなかった。そこで、国際出願PCT/JP96/00233号には、有機EL素子と蛍光体層の間に0.01~200 $\mu$ mの透明な絶縁性無機酸化物層を配設したり、特願平8-185400号においては、有機EL素子とカラーフィルタとの間に0.01~200 $\mu$ mの透明な絶縁性無機酸化物層を配設して、色変換層（蛍光体層、カラーフィルタ）や色変換層上の保護層（平坦化層）から発生する水蒸気、または酸素を遮断して封止の改良を進めている。しかしながら、多色発光表

示装置の外部から侵入する水分や酸素を遮断する封止に対しては、明確な開示がされておらず、有機EL多色発光表示装置を実用化するには不十分であった。

#### 【0010】

【発明が解決しようとする課題】本発明は上述の問題に鑑みなされたものであり、水分や酸素の影響を受けにくく保存安定性に優れた有機EL多色発光表示装置を提供することを目的とする。

#### 【0011】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するため本発明によれば、下記を要旨とする有機EL多色発光表示装置が提供される。

〔1〕透光性基板上に、少なくとも色変換層と、発光層を含んだ有機物層を下部電極および上部電極の二つの電極間に挟持した有機EL素子とを順次積層して、表示領域を形成してなる有機EL多色発光表示装置において、表示領域の周辺に、前記電極を延長して形成した延長電極または前記電極と接続して形成した取出電極を配設してなるとともに、表示領域を被覆するように封止部材を配設してなり、かつ延長電極または取出電極、および透光性基板の表面に前記封止部材を接着してなることを特徴とする有機EL多色発光表示装置。

〔2〕透光性基板上に、少なくとも色変換層と、これを被覆した平坦化層と、発光層を含んだ有機物層を下部電極および上部電極の二つの電極間に挟持した有機EL素子とを順次積層して、表示領域を形成してなる有機EL多色発光表示装置において、表示領域の周辺に、前記電極を延長して形成した延長電極または前記電極と接続して形成した取出電極を配設してなるとともに、表示領域を被覆するように封止部材を配設してなり、かつ延長電極または取出電極、および透光性基板の表面に前記封止部材を接着してなることを特徴とする有機EL多色発光表示装置。

〔3〕透光性基板上に、少なくとも色変換層と、これを被覆した平坦化層と、発光層を含んだ有機物層を下部電極および上部電極の二つの電極間に挟持した有機EL素子とを順次積層して、表示領域を形成してなる有機EL多色発光表示装置において、表示領域の周辺に、前記電極を延長して形成した延長電極または前記電極と接続して形成した取出電極を配設してなるとともに、表示領域を被覆するように封止部材を配設してなり、かつ延長電極または取出電極、および平坦化層の表面に前記封止部材を接着してなることを特徴とする有機EL多色発光表示装置。

〔4〕前記平坦化層の水分含有量が、1.0重量%以下、および/または水蒸気または酸素のガス透過係数が、それぞれ $10^{-12}$  cc $\cdot$ cm/cm $^2$  $\cdot$ s $\cdot$ cmHg以下であることを特徴とする〔2〕または〔3〕記載の有機EL多色発光表示装置。

〔5〕前記平坦化層の周縁部が、周縁側に向けて漸次傾

斜してなる〔2〕～〔4〕のいずれか一つに記載の有機EL多色発光表示装置。

〔6〕平坦化層が、無機酸化物および／または無機酸化物層を含む〔2〕～〔5〕のいずれか一つに記載の有機EL多色発光表示装置。

〔7〕前記無機酸化物が、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、および酸化チタンからなる群から選ばれる一種以上の化合物である〔6〕記載の有機EL多色発光表示装置。

#### 【0012】

【発明の実施の形態】以下、本発明の有機EL多色発光表示装置の実施の形態を図面を参照しつつ具体的に説明する。

##### 1. 構成

本発明の有機EL多色発光表示装置としては、まず図1に示す構成（構成A）を挙げることができる。すなわち、透光性基板1上に、少なくとも色変換層2と、発光層を含んだ有機物層31を下部電極32および上部電極33の二つの電極間に挟持した有機EL素子3とを順次積層して、表示領域4を形成してなる有機EL多色発光表示装置において、表示領域4の周辺に、前記電極を延長して形成した延長電極または前記電極と接続して形成した取出電極5を配設してなるとともに、表示領域4を被覆するように封止部材6を配設してなり、かつ延長電極または取出電極5、および透光性基板1の表面に前記封止部材6を接着してなる（接着部7）ことを特徴とする有機EL多色発光表示装置である。このような構成とすることにより、有機EL多色発光装置の表示領域に侵入する水分や酸素を外部から遮断し、装置の保存安定性を向上することができる。なお、封止部材と表示領域との間隙には、有機EL素子を劣化させない不活性物質または乾燥剤が注入されることが好ましい。

【0013】次に、図2に示す構成（構成B）を挙げることができる。すなわち、透光性基板1上に、少なくとも色変換層2と、これを被覆した平坦化層8と、発光層を含んだ有機物層31を下部電極32および上部電極33の二つの電極間に挟持した有機EL素子3とを順次積層して、表示領域4を形成してなる有機EL多色発光表示装置において、表示領域4の周辺に、前記電極を延長して形成した延長電極または前記電極と接続して形成した取出電極（図示せず）を配設してなるとともに、表示領域4を被覆するように封止部材6を配設してなり、かつ延長電極または取出電極（図示せず）、および透光性基板1の表面に前記封止部材6を接着してなる（接着部7）ことを特徴とする有機EL多色発光表示装置である。この構成は前記構成Aに加えて、色変換層2を平坦化層8が被覆した構成となっている。この構成とすることにより、前述の外部からの水分や酸素を遮断して、装置の保存安定性を向上できることに加えて、色変換層2上の凹凸を平坦化し、色変換層2の周辺部の段差を緩和

して、積層される下部電極及び上部電極のひずみによる断線及び下部電極と上部電極との短絡を低減することができるのでより好ましい。

【0014】次に、図3に示す構成（構成C）を挙げることができる。すなわち、この構成は、平坦化層8が、封止部材の接着する部分（接着部7）の外側（表示領域4の反対側）にまで透光性基板1上に積層されている構成である。ここで有機EL多色発光表示装置は、外部からの水分または酸素のみならず、有機EL素子の下層にある色変換層2や平坦化層8に含まれる水分や酸素によっても非発光領域の発生とともに表示性能を低下させる。従って、少なくとも平坦化層8中の水分含有量を小さくしておくことが好ましい。

【0015】従って、平坦化層8を用いた構成B、構成Cおよび後述する構成Dの場合は、前記平坦化層8の水分含有量が、1.0重量%以下、および／または水蒸気または酸素のガス透過係数が、それぞれ $10^{-12}$  cc・cm/cm<sup>2</sup>・s・cmHg以下であることが好ましい。特に、平坦化層8が封止部材6の外側にまで透光性基板1上に積層された構成（図3、構成C）では、平坦化層8が外気と接触して、外気中の水分または酸素が平坦化層8を透過して、表示領域4に侵入する危険性がある。そのために、平坦化層8の水蒸気または酸素のガス透過係数も重要な条件となる。

【0016】なお、平坦化層8の水分含有量は、ASTM D570-63による方法や、熱分析（示差熱分析DTA、示差走査熱量測定DSC）またはカルフィッシャー法等によって測定することができる。また、水蒸気または酸素のガス透過係数は、JIS Z0208およびJIS K7126の気体透過度試験方法等により測定することができる。JIS Z0208に記載されている定義は、温度25℃または40℃、相対湿度90%以下で、材料（膜）1m<sup>2</sup>あたり24時間に通過するガス（例えば水蒸気）の質量で表わされる量である。

【0017】多色発光表示装置の表示性能の評価は、非発光領域の径の平均値が室温保存で50μm以下を維持できる日数で見ることができる。通常、平坦化層の水分含有量が1.0重量%以下で14日以上保存で良好であり、水蒸気または酸素のガス透過係数が $10^{-12}$  cc・cm/cm<sup>2</sup>・s・cmHg以下で（特に構成Cの場合）、14日以上保存が良好である。

【0018】さらに、図4に示す構成（構成D）とすることもできる。すなわち、平坦化層8の周縁部が、周縁側に向けて漸次傾斜しているようにしたものである。この構成は、図2に示す構成Bの改良例であり、平坦化層8の周縁部における有機EL素子3の下部電極32および上部電極33のひずみを低減して断線を低減することができるので好ましい。

#### 【0019】2. 各構成要素

以下、本発明の各構成要素を具体的に説明する。

### ①透光性基板

本発明に用いられる透光性基板は、多色発光装置を支持する基板であり、400nm～700nmの可視領域の光の透過率が50%以上で、平滑な基板が好ましい。具体的には、ガラス板、ポリマー板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。特に、ガラス板が外気をほぼ完全に遮断できることと、駆動回路と電極（下部電極、上部電極、延長電極または取出電極）を接続する際に、確実な接続を行うための熱圧着処理ができるので好ましい（特に構成A、B、Dの場合）。

### 【0020】②色変換層

本発明の色変換層は、一以上の蛍光体層を含む複数の異なる色変換層が平面的に分離配置され、各色変換層は有機EL素子の下部電極と上部電極との交差部分の位置に対応して配置される。有機EL多色発光表示装置は、下部電極と上部電極との交差部分が発光し、その光を各色変換層が受光して異なる発光をする。なお、本発明に用いられる色変換層は、一以上の蛍光体層を含むものであるが発光部材の光を分解またはカットして色調整する意味のカラーフィルタを含んでいてもよい。また、各色変換層間に、有機EL素子の発光及び各色変換層からの光を遮断して、コントラストを向上させ、視野角依存性を低減するために、遮光層（ブラックマトリックス）を配置することがより好ましい。

【0021】蛍光体層としては、例えば、蛍光色素および樹脂、または蛍光色素のみからなり、蛍光色素および樹脂からなるものは蛍光色素を顔料樹脂および／またはバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げることができる。具体的な蛍光色素について説明する。まず、近紫外光からは紫色の有機EL素子の発光から青色発光に変換する蛍光色素としては、1, 4-ビス（2-メチルスチリル）ベンゼン（以下Bis-MSB）、トランス-4, 4'-ジフェニルスチルベン（以下DPS）等のスチルベン系色素、7-ヒドロキシ-4-メチルクマリン（以下クマリン4）等のクマリン系色素を挙げることができる。

【0022】次に、青色、青緑色または白色発光部材の発光から緑色発光に変換する蛍光色素については、例えば、2, 3, 5, 6-1H, 4H-テトラヒドロ-8-トリフルロメチルキノリジノ（9, 9a, 1-g h）クマリン（以下クマリン153）、3-（2'-ベンゾチアゾリル）-7-ジエチルアミノクマリン（以下クマリン6）、3-（2'-ベンズイミダゾリル）-7-N, N-ジエチルアミノクマリン（以下クマリン7）等のク

マリン色素、他クマリン色素系染料であるがベーシックイエロー51、また、ソルベントイエロー11、ソルベントイエロー116等のナフタルイミド色素を挙げることができる。

【0023】また、青色から緑色までの、または白色の発光部材の発光から、橙色から赤色までの発光に変換する蛍光色素については、例えば、4-ジシアノメチレン-2-メチル-6-（p-ジメチルアミノスチリル）-4H-ピラン（以下DCM）等のシアニン系色素、1-エチル-2-（4-（p-ジメチルアミノフェニル）-1, 3-ブタジエニル）-ピリジニウム-パークロレート（以下ピリジン1）等のピリジン系色素、ローダミンB、ローダミン6G等のローダミン系色素、他にオキサジン系が挙げられる。

【0024】さらに、各種染料（直接染料、酸性染料、塩基性染料、分散染料等）も蛍光性があれば選択することが可能である。また、前記蛍光色素をポリメタクリル酸エステル、ポリ塩化ビニル、塩化ビニル酢酸ビニル共重合体、アルキッド樹脂、芳香族スルホンアミド樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、ベンゾグアナミン樹脂等の顔料樹脂中にあらかじめ練りこんで顔料化したものでもよい。

【0025】また、これらの蛍光色素または顔料は、必要に応じて、単独または混合して用いてもよい。

【0026】一方、バインダー樹脂は、透明な（可視光50%以上）材料が好ましい。例えば、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂（高分子）が挙げられる。

【0027】なお、蛍光体層を平面的に分離配置するために、フォトリソグラフィ法が適用できる感光性樹脂も選ばれる。例えば、アクリル酸系、メタクリル酸系、ポリケイ皮酸ビニル系、環ゴム系等の反応性ビニル基を有する光硬化型レジスト材料が挙げられる。また、印刷法を用いる場合には、透明な樹脂を用いた印刷インキ（メジウム）が選ばれる。例えば、ポリ塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン、ヒドロキシエチルセルロース、カルボキシメチルセルロース等の透明樹脂を用いることができる。

【0028】蛍光体層が主に蛍光色素からなる場合は、所望の蛍光体層パターンをマスクを介して真空蒸着またはスパッタリング法で成膜され、一方、蛍光色素と樹脂からなる場合は、蛍光色素と樹脂と適当な溶剤とを混合、分散または可溶化させて液状とし、スピンコート、ロールコート、キャスト法等の方法で成膜し、フォトリ

ソグラフィ法で所望の蛍光体層パターンでパターンニングしたり、スクリーン印刷等の方法で所望の蛍光体層パターンでパターンニングするのが一般的である。

【0029】蛍光体層の膜厚は、有機EL素子の発光を十分に受光（吸収）し、蛍光を発生する機能を妨げるものでなければ制限はないが、 $10\text{ nm}\sim 1\text{ mm}$ 、好ましくは、 $1\text{ }\mu\text{ m}\sim 1\text{ mm}$ 、より好ましくは $10\text{ }\mu\text{ m}\sim 100\text{ }\mu\text{ m}$ である。蛍光色素の顔料樹脂および／またはバインダー樹脂を含めた蛍光体層中の濃度は、蛍光色素によって異なるが、 $1\sim 10^{-4}\text{ mol/kg}$ 、好ましくは $0.1\sim 10^{-3}\text{ mol/kg}$ 、より好ましくは、 $0.05\sim 10^{-2}\text{ mol/kg}$ である。

【0030】一方、カラーフィルタ層としては、例えば、下記の色素のみまたは、色素をバインダー樹脂中に溶解または分散させた固体状態のものを挙げることができる。

【0031】赤色（R）色素：ペリレン系顔料、レーキ顔料、アゾ系顔料、キナクリドン系顔料、アントラキノ系顔料、アントラセン系顔料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0032】緑色（G）色素：ハロゲン多置換フタロシアニン系顔料、ハロゲン多置換銅フタロシアニン系顔料、トリフェニルメタン系塩基性染料、イソインドリン系顔料、イソインドリノン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0033】青色（B）色素：銅フタロシアニン系顔料、インダンスロン系顔料、インドフェノール系顔料、シアニン系顔料、ジオキサジン系顔料等の単品および少なくとも二種類以上の混合物

【0034】前記バインダー樹脂としては、蛍光体層と同様の材料を選ぶことができる。また、カラーフィルタを平面的に分離配置するために必要なバインダー樹脂も蛍光体層と同様の材料を選ぶことができる。

【0035】また、特にカラーフィルタが主に色素からなる場合も、色素とバインダー樹脂からなる場合も蛍光体層と同様にパターンニングできる。

【0036】カラーフィルタが、色素とバインダー樹脂からなるものは、色素の濃度は、カラーフィルタが問題なくパターンニングできて、かつ、有機EL素子の発光を十分透過できる範囲であればよい。一般的には、色素の種類にもよるが、使用するバインダー樹脂を含めたカラーフィルタ膜に色素が $5\sim 50$ 重量％含まれる。

#### 【0037】③平坦化層

本発明において、平坦化層は、色変換層を被覆するように設けられ、 $400\text{ nm}\sim 700\text{ nm}$ の光の透過率が $50\%$ 以上で、電気絶縁層性のものであることが好ましい。平坦化層は単層でもよいし、多層に構成されていてもよい。

【0038】平坦化層をポリマー層とする場合、そのポ

リマーとして、具体的には、光硬化型樹脂および／または熱硬化型樹脂のように、アクリレート系、メタクリレート系の反応性ビニル基を有するものの硬化物を挙げることができる。また、環状オレフィン系樹脂、アクリロニトリル樹脂、塩化ビニリデン樹脂、塩化ビニル樹脂、メラミン樹脂、フェノール樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、ポリエステル樹脂、マレイン酸樹脂、ポリアミド樹脂、シリコーン樹脂、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリレート、ポリカーボネート、ポリエチレン、ポリスチレン、ポリプロピレン、アニリンホルムアルデヒド樹脂等の透明樹脂、および各種フッ素ポリマーを挙げることができる。

【0039】また、無機酸化物層とする場合、具体的には、酸化ケイ素（ $\text{SiO}_2$ ）、酸化アルミニウム（ $\text{Al}_2\text{O}_3$ ）酸化チタン（ $\text{TiO}_2$ ）、酸化イットリウム（ $\text{Y}_2\text{O}_3$ ）、酸化ゲルマニウム（ $\text{GeO}_2$ ）、酸化亜鉛（ $\text{ZnO}$ ）、酸化マグネシウム（ $\text{MgO}$ ）、酸化カルシウム（ $\text{CaO}$ ）、ほう酸（ $\text{B}_2\text{O}_3$ ）、酸化ストロンチウム（ $\text{SrO}$ ）、酸化バリウム（ $\text{BaO}$ ）、酸化鉛（ $\text{PbO}$ ）、ジルコニア（ $\text{ZrO}_2$ ）、酸化ナトリウム（ $\text{Na}_2\text{O}$ ）、酸化リチウム（ $\text{Li}_2\text{O}$ ）、酸化カリウム（ $\text{K}_2\text{O}$ ）等の無機酸化物の層を挙げることができる。

【0040】また、無機酸化物層として、ガラス板を挙げることができる。特に、ソーダー石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸塩ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス等を挙げることができる。なお、以上の無機酸化物層は、その組成として、無機酸化物を主に含むものであればよく、窒化物（例えば $\text{Si}_3\text{N}_4$ ）が含まれていてもよい。このような平坦化層の性質として、水分含有量が $1.0$ 重量％以下とすることが好ましく、 $0.5$ 重量％以下がさらに好ましく、 $0.1$ 重量％以下が特に好ましい。また、水蒸気または酸素のガス透過係数が、それぞれ $10^{-12}\text{ cc}\cdot\text{cm}/\text{cm}^2\cdot\text{s}\cdot\text{cmHg}$ 以下であることが好ましく、 $10^{-13}\text{ cc}\cdot\text{cm}/\text{cm}^2\cdot\text{s}\cdot\text{cmHg}$ 以下とすることがさらに好ましい。理想的には、水分含有量、ガス透過係数のいずれも上記条件を満足することがより好ましい。特に、この条件を満足するものは、平坦化層が上記無機酸化物および／または無機酸化物層を含むものであり、より具体的には、無機酸化物が、酸化ケイ素、酸化アルミニウム、および酸化チタンからなる群から選ばれる一種以上の化合物が挙げられ、無機酸化物の膜性が結晶性の層よりもガラス状の層が、ガス透過性が小さいので好ましい。また、無機酸化物層は、有機EL素子（下部電極）との界面に配置するのが好ましい。

【0041】これらの平坦化層は、固体状の材料（主に樹脂）を適当な溶媒で液状とし、スピンコート、キャスト法、スクリーン印刷法等の方法で成膜し、固体状の材

料（主に無機酸化物）をそのまま使用する場合は、スパッタリング、蒸着、CVD、イオンプレーティング等の方法で成膜される。また、適当な金属を成膜後、陽極酸化して無機酸化物層とすることができる。また、無機酸化物層がガラス板の場合は、接着剤を用いて貼り合わせる。特に、平坦化層を封止部材の内部のみに形成する場合（構成B、D）には、平坦化層をフォトリソグラフィー法でパターンニングするか、所望のパターンで印刷すればよいし、スパッタリング等の成膜を行う場合にはマスキング手法を適用すればよい。さらに、平坦化層の周縁部を周縁側に向けて漸次傾斜させる場合（構成D）には、光硬化型樹脂を用いて、フォトリソプロセスの露光時にマスクと基板とのギャップを大きくとって露光するか、平坦化層の矩形形状のパターンを形成後、周縁部を研磨する等の方法が挙げられる。マスキング成膜を行う場合も、マスクと基板とのギャップを大きくとればよい。平坦化層の膜厚は、表示の精細度、色変換層の凹凸にもよるが好ましくは10nm～1mm、さらに好ましくは100nm～100μm、特に好ましくは100nm～10μmで、薄膜化すると高精細表示の視野角依存性を低減するし、構成Cの場合には、水分、酸素が侵入しにくくなるので有利である。一方、薄膜化しすぎると色変換層の凹凸が緩和しにくくなり、電極の断線、素子の短絡等の表示欠陥を引き起こすし、構成B、Dの場合は色変換層の含まれる水分、酸素の遮断が不十分になるので、適度な膜厚が必要である。

#### 【0042】④有機EL素子

本発明に用いられる有機EL素子は、下部電極と上部電極の二つの電極で発光層を含む有機物層を挟持してなり、有機物層として、再結合領域および発光領域を少なくとも有するものが用いられる。この再結合領域および発光領域は、通常発光層に存在するため、本発明においては、有機物層として発光層のみを用いてもよいが、必要に応じ、発光層以外に、例えば正孔注入層、電子注入層、有機半導体層、電子障壁層、付着改善層なども用いることができる。

【0043】次に本発明に用いられる有機EL素子の代表的な構成例を示す。もちろん、これに限定されるものではない。ここで、下部電極は、陽極としても陰極としてもよい。一方、上部電極は反対の極性をもつものとする。以下、二つの電極を陽極と陰極とする。ただし、下部電極は本発明では、発光層からの光を取出す側としている。

- ①陽極／発光層／陰極
- ②陽極／正孔注入層／発光層／陰極
- ③陽極／発光層／電子注入層／陰極
- ④陽極／正孔注入層／発光層／電子注入層／陰極
- ⑤陽極／有機半導体層／発光層／陰極
- ⑥陽極／有機半導体層／電子障壁層／発光層／陰極
- ⑦陽極／正孔注入層／発光層／付着改善層／陰極

などの構造を挙げることができる。これらの中で、通常④の構成が好ましく用いられる。

#### 【0044】④-1. 陽極

陽極としては、仕事関数の大きい（4eV以上）金属、合金、電気伝導性化合物またはこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Au等の金属、CuI、ITO、SnO<sub>2</sub>、ZnO等の導電性透明材料が挙げられる。陽極は、これらの電極物質を蒸着法やスパッタリング法等の方法で、薄膜を形成させることにより作製することができる。ここで、発光層からの発光を陽極から取り出す場合、陽極の発光に対する透過率が10%より大きくすることが好ましい。また、陽極のシート抵抗は、数百Ω/□以下が好ましい。陽極の膜厚は材料にもよるが、通常10nm～1μm、好ましくは10～200nmの範囲で選択される。

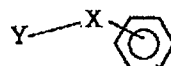
【0045】なお、延長電極または取出電極としては、陽極に用いられる、仕事関数の大きい（酸化安定性のある）電極が好ましく用いられる。

#### ④-2. 発光層

有機EL素子の発光材料は主に有機化合物であり、具体的には所望の色調により次のような化合物が挙げられる。まず、紫外域から紫色の発光を得る場合には、下記の一般式であらわされる化合物が挙げられる。

【0046】

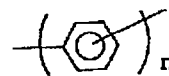
【化1】



【0047】この一般式において、Xは下記化合物を示す。

【0048】

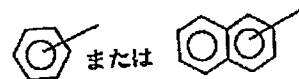
【化2】



【0049】ここでnは、2、3、4または5である。また、Yは下記化合物を示す。

【0050】

【化3】



【0051】上記化合物のフェニル基、フェニレン基、ナフチル基に炭素数1～4のアルキル基、アルコキシ基、水酸基、スルホン基、カルボニル基、アミノ基、ジメチルアミノ基またはジフェニルアミノ基等が単独または複数置換したものであってもよい。また、これらは互いに結合し、飽和5員環、6員環を形成してもよい。また、フェニル基、フェニレン基、ナフチル基にパラ位で結合したものが、結合性がよく平滑な蒸着膜の形成の

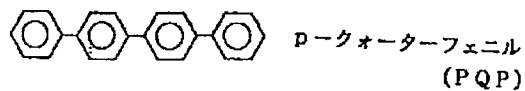


ために好ましい。具体的には以下の化合物である。特に、p-クォーターフェニル誘導体、p-クインクフェニル誘導体が好ましい。

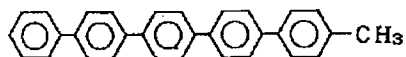
【0052】

【化4】

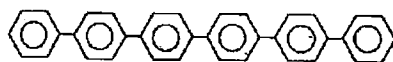
(1)



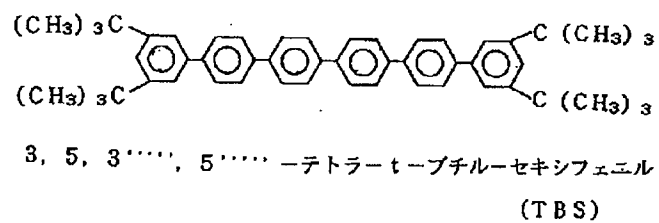
(2)



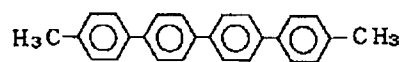
(3)



(4)



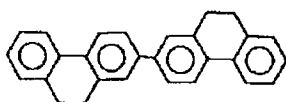
(5)



【0053】

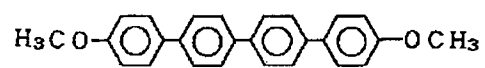
【化5】

【化6】

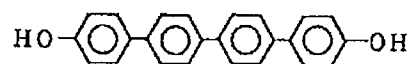


The chemical structure of BBT consists of two benzotriazole units connected at their 4-positions. Each benzotriazole unit is a benzene ring fused to a triazole ring. The two units are linked by a single bond between their 4-positions. The triazole rings are oriented such that their 1-positions are at the ends of the molecule, and their 2-positions are adjacent to the linkage point. The structure is symmetrical.

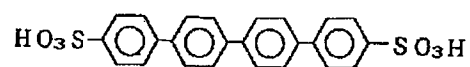
(1 1)



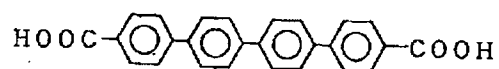
(1 2)



(1 3)



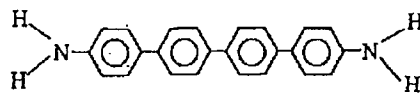
(1 4)



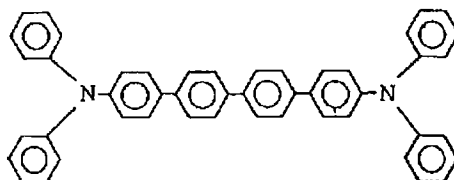
【 0 0 5 5 】

【 化 7 】

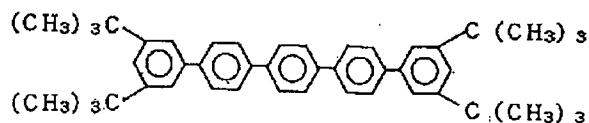
(15)



(16)



(17)



3, 5, 3', 5'-テトラ-*t*-ブチル-*p*-quinqueフェニル  
(TBQ)

【0056】次に、青色から緑色の発光を得るためには、例えば、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系、ベンゾオキサゾール系等の蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、スチリルベンゼン系化合物を挙げることができる。

【0057】具体的に化合物名を示せば、例えば、特開昭59-194393号公報に開示されているものを挙げることができる。その代表例としては、ベンゾオキサゾール系、ベンゾチアゾール系、ベンゾイミダゾール系等の蛍光増白剤を挙げることができる。さらに、他の有用な化合物は、ケミストリー・オブ・シンセティック・ダイズ1971, 628~637頁および640頁に列挙されている。

【0058】前記キレート化オキシノイド化合物としては、例えば特開昭63-295695号公報に開示されているものを用いることができる。その代表例としては、トリス(8-キノリノール)アルミニウム(以下A1qと略記する)等の8-ヒドロキシキノリン系金属錯体やジリチウムエピントリジオン等を挙げることができる。

【0059】また、前記スチリルベンゼン系化合物としては、例えば欧州特許第0319881号明細書や欧州特許第0373582号明細書に開示されているものを用いることができる。

【0060】また、特開平2-252793号公報に開示されているジスチリルピラジン誘導体も発光層の材料として用いることができる。その他のものとして、例えば欧州特許第0387715号明細書に開示されているポリフェニル系化合物も発光層の材料として用いることもできる。

【0061】さらに、上述した蛍光増白剤、金属キレート化オキシノイド化合物、およびスチリルベンゼン系化合物等以外に、例えば1,2-フタロペリノン(J. Appl. Phys., 第27巻, L713(1988年))、1,4-ジフェニル-1,3-ブタジエン、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン(以上Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、ナフタルイミド誘導体(特開平2-305886号公報)、ペリレン誘導体(特開平2-189890号公報)、オキサジアゾール誘導体(特開平2-216791号公報、または第38回応用物理学関係連合講演会で浜田らによって開示されたオキサジアゾール誘導体)、アルダジン誘導体(特開平2-220393号公報)、ピラジン誘導体(特開平2-220394号公報)、シクロペンタジエン誘導体(特開平2-289675号公報)、ピロロピロール誘導体(特開平2-296891号公報)、スチリルアミン誘導体(Appl. Phys. Lett., 第56巻, L799(1990年))、クマリン系化合物(特開平

2-191694号公報)、国際公開公報WO90/13148やAppl. Phys. Lett., vol 58, 18, P1982(1991)に記載されているような高分子化合物等も、発光層の材料として用いることができる。

【0062】本発明では、特に発光層の材料として、芳香族ジメチリデン系化合物(欧州特許第0388768号明細書や特開平3-231970号公報に開示のもの)を用いることが好ましい。具体例としては、4, 4'-ビス(2, 2-ジ-*t*-ブチルフェニルビニル)ビフェニル、(以下、DTBPBiと略記する)、4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル(以下DPVBiと略記する)等、およびそれらの誘導体を挙げるることができる。

【0063】さらに、特開平5-258862号公報等に記載されている一般式( $R_S-Q$ )<sub>2</sub>-AL-O-Lであらわされる化合物も挙げられる。(上記式中、Lはフェニル部分を含んでなる炭素原子6~24個の炭化水素であり、O-Lはフェノラート配位子であり、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、R<sub>S</sub>はアルミニウム原子に置換8-キノリノラート配位子が2個を上回り結合するのを立体的に妨害するように選ばれた8-キノリノラート環置換基を表す)具体的には、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(パラフェニルフェノラート)アルミニウム(III)(以下PC-7)、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム(III)(以下PC-17)等が挙げられる。その他、特開平6-9953号公報等によるドーピングを用いた高効率の青色と緑色の混合発光を得る方法が挙げられる。この場合、ホストとしては上記に記載した発光材料、ドーパントとしては、青色から緑色までの強い蛍光色素、例えばクマリン系あるいは上記記載のホストとして用いられているものと同様な蛍光色素を挙げるることができる。具体的には、ホストとしてジスチリルアアリーレン骨格の発光材料、特に好ましくは例えばDPVBi、ドーパントとしてはジフェニルアミノビニルアアリーレン、特に好ましくは例えばN, N-ジフェニルアミノビニルベンゼン(DPAVB)を挙げることができる。

【0064】白色の発光を得る発光層としては、特に制限はないが下記のものを挙げるることができる。

- ①有機EL積層構造体の各層のエネルギー準位を規定し、トンネル注入を利用して発光させるもの(ヨーロッパ公開特許第0390551号公報)
- ②①と同じくトンネル注入を利用する素子で実施例として白色発光素子が記載されているもの(特開平3-230584号公報)
- ③二層構造の発光層が記載されているもの(特開平2-220390号公報および特開平2-216790号公報)
- ④発光層を複数に分割してそれぞれ発光波長の異なる材

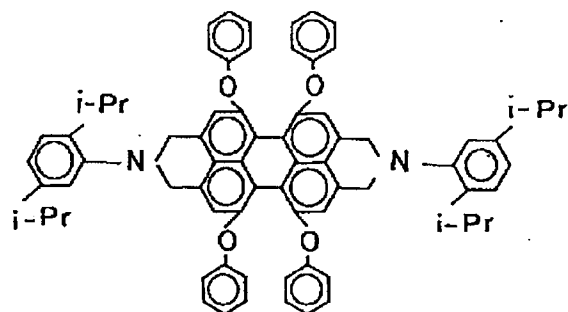
料で構成されたもの(特開平4-51491号公報)

⑤青色発光体(蛍光ピーク380nm~480nm)と緑色発光体(480nm~580nm)とを積層させ、さらに赤色発光体を含有させた構成のもの(特開平6-207170号公報)

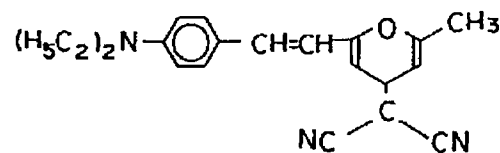
⑥青色発光層が青色蛍光色素を含有し、緑色発光層が赤色蛍光色素を含有した領域を有し、さらに緑色発光体を含有する構成のもの(特開平7-142169号公報)中でも、⑤の構成のものが好ましく用いられる。また、赤色発光体の例を[化8]に示す。

【0065】

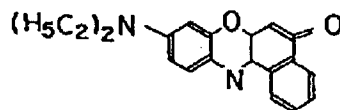
【化8】



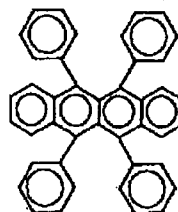
(ルメゲンレッド)



(ジシアノメチレンピラン)



(フェノキサゾン)



(ルブレン)

【0066】前記材料を用いて、発光層を形成する方法としては、例えば蒸着法、スピンコート法、LB法等の公知の方法を適用することができる。発光層は、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで分子堆積膜とは、気相状態の材料化合物から沈着され形成された薄膜や、溶液状態または液相状態の材料化合物から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜は、LB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは凝集構

造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区分することができる。また、特開昭57-51781号公報に開示されているように、樹脂等の結着剤と材料化合物とを溶剤に溶かして溶液とした後、これをスピコート法等により薄膜化することによっても、発光層を形成することができる。このようにして、形成される発光層の膜厚については特に制限はなく、状況に応じて適宜選択することができるが、通常5nm~5μmの範囲が好ましい。有機EL素子の発光層は以下の機能を併せ持つものである。すなわち、①注入機能；電界印加時に陽極または正孔注入層より正孔を注入することができ、陰極または電子注入層より電子を注入することができる機能、②輸送機能；注入した電荷（電子と正孔）を電界の力で移動させる機能、③発光機能；電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる機能、がある。但し、正孔の注入されやすさと電子の注入されやすさに違いがあってもよく、また正孔と電子の移動度であらわされる輸送能に大小があてもよいが、どちらか一方の電荷を移動することが好ましい。

#### 【0067】④-3. 正孔注入層

次に、正孔注入層は、必ずしも本発明に用いられる素子に必要なものではないが、発光性能の向上のために用いた方が好ましいものである。この正孔注入層は発光層への正孔注入を助ける層であって、正孔移動度が大きく、イオン化エネルギーが、通常5.5eV以下と小さい。このような正孔注入層としては、より低い電界で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が、例えば $10^4 \sim 10^6$  V/cmの電界印加時に、少なくとも $10^{-6}$  cm<sup>2</sup>/V・秒であればなお好ましい。このような正孔注入材料については、前記の好ましい性質を有するものであれば特に制限はなく、従来、光導伝材料において、正孔の電荷輸送材として慣用されているものや、EL素子の正孔注入層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0068】具体例としては、例えばトリアゾール誘導体（米国特許3, 112, 197号明細書等参照）、オキサジアゾール誘導体（米国特許3, 189, 447号明細書等参照）、イミダゾール誘導体（特公昭37-16096号公報等参照）、ポリアリーラルカン誘導体（米国特許3, 615, 402号明細書、同第3, 820, 989号明細書、同第3, 542, 544号明細書、特公昭45-555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照）、ピラズリン誘導体およびピラズロン誘導体（米国特許第3, 180, 729号明細書、同第4, 278, 746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同5

6-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照）、フェニレンジアミン誘導体（米国特許第3, 615, 404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照）、アリーラルアミン誘導体（米国特許第3, 567, 450号明細書、同第3, 180, 703号明細書、同第3, 240, 597号明細書、同第3, 658, 520号明細書、同第4, 232, 103号明細書、同第4, 175, 961号明細書、同第4, 012, 376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1, 110, 518号明細書等参照）、アミノ置換カルコン誘導体（米国特許第3, 526, 501号明細書等参照）、オキサゾール誘導体（米国特許第3, 257, 203号明細書等に掲載のもの）、スチルアントラセン誘導体（特開昭56-46234号公報等参照）、フルオレノン誘導体（特開昭54-110837号公報等参照）、ヒドラゾン誘導体（米国特許第3, 717, 462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照）、スチルベン誘導体（特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照）、シラザン誘導体（米国特許第4, 950, 950号明細書）、ポリシラン系（特開平2-204996号公報）、アニリン系共重合体（特開平2-282263号公報）、特開平1-211399号公報に開示されている導電性高分子オリゴマー（特にチオフェンオリゴマー）等を挙げることができる。正孔注入層の材料としては上記のものを使用することができるが、ポルフィリン化合物（特開昭63-2956965号公報等に掲載のもの）、芳香族第三級アミン化合物およびスチルリアミン化合物（米国特許第4, 127, 412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報

等参照)、特に芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。また、米国特許第5,061,569号に記載されている2個の縮合芳香族環を分子内に有する、例えば、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(以下NPDと略記する)、また、特開平4-308688号公報で記載されているトリフェニルアミンユニットが3つスターバースト型に連結された4,4',4''-トリス[N-(3-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン(以下MTDATAと略記する)等を挙げることができる。また、発光層の材料として示した前述の芳香族ジメチリディン系化合物の他、p型-Si, p型SiC等の無機化合物も正孔注入層の材料として使用することができる。正孔注入層は、上述した化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の方法により薄膜化することにより形成することができる。正孔注入層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は5nm~5μmである。この正孔注入層は、上述した材料の一種または二種以上からなる一層で構成されていてもよいし、または、前記正孔注入層とは別種の化合物からなる正孔注入層を積層したものであってもよい。また、有機半導体層は、発光層への正孔注入または電子注入を助ける層であって、 $10^{-10}$  S/cm以上

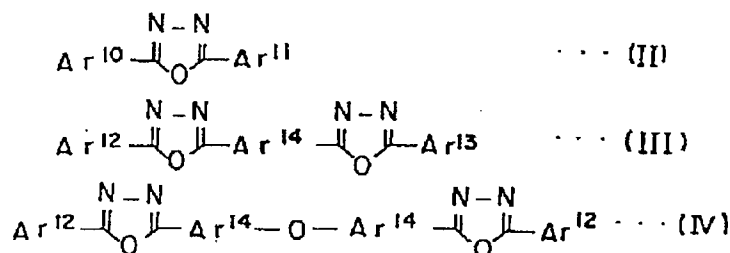
の導電率を有するものが好適である。このような有機半導体層の材料としては、含チオフェンオリゴマーや含アリールアミンオリゴマーなどの導電性オリゴマー、含アリールアミンデンドリマーなどの導電性デンドリマーなどを用いることができる。

#### 【0069】④-4. 電子注入層

一方電子注入層は、発光層への電子の注入を助ける層であって、電子移動度が大きく、また付着改善層は、この電子注入層の中で、特に陰極との付着が良い材料からなる層である。電子注入層に用いられる材料としては、例えば8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体、あるいはオキサジアゾール誘導体が好ましく挙げられる。また、付着改善層に用いられる材料としては、特に8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体が好適である。上記8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体の具体例としては、オキシシ(一般に8-キノリノールまたは8-ヒドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物が挙げられる。例えば先に記載したAlqを電子注入層として用いることができる。一方、オキサジアゾール誘導体としては、一般式(II)、(III)および(IV)

【0070】

【化9】

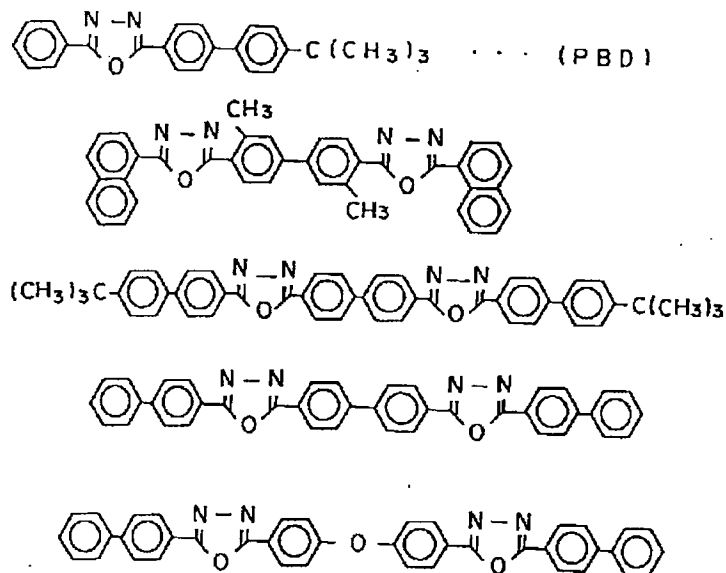


【0071】(式中Ar<sup>10</sup>~Ar<sup>13</sup>はそれぞれ置換または無置換のアリール基を示し、Ar<sup>10</sup>とAr<sup>11</sup>およびAr<sup>12</sup>とAr<sup>13</sup>はそれぞれにおいて互いに同一であっても異なってもよく、Ar<sup>14</sup>置換または無置換のアリレン基を示す。)で表わされる電子伝達化合物が挙げられる。ここで、アリール基としてはフェニル基、ビフェニル基、アントラニル基、ペリレニル基、ピレニル基などが挙げられ、アリレン基としてはフェニレン基、ナフチレン基、ビフェニレン基、アントラセニレン基、ペ

ニレニレン基、ピレニレン基などが挙げられる。また、置換基としては炭素数1~10のアルキル基、炭素数1~10のアルコキシ基またはシアノ基などが挙げられる。この電子伝達化合物は、薄膜形成性のものが好ましい。上記電子伝達化合物の具体例としては、下記のものを挙げることができる。

【0072】

【化10】



#### 【0073】④-5. 陰極

陰極としては、仕事関数の小さい(4 eV以下)金属、合金、電気伝導性化合物およびこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム・銀合金、アルミニウム/酸化アルミニウム( $Al_2O_3$ )、アルミニウム・リチウム合金、インジウム、希土類金属などが挙げられる。この陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。ここで、発光層からの発光を陰極から取出す場合、陰極の発光に対する透過率は10%より大きくすることが好ましい。また、陰極としてのシート抵抗は数百 $\Omega/\square$ 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm~1  $\mu$ m、50~200 nmの範囲が好ましい。

#### 【0074】④-6. 有機EL素子の作製(例)

以上例示した材料および方法により陽極、発光層、必要に応じて正孔注入層、および必要に応じて電子注入層を形成し、さらに陰極を形成することにより、有機EL素子を作製することができる。また、陰極から陽極へ、前記と逆の順序で有機EL素子を作製することもできる。

【0075】以下に支持基板上に陽極/正孔注入層/発光層/電子注入層/陰極が順次設けられた構成の有機EL素子の作製例を記載する。まず、適当な基板上に、陽極材料からなる薄膜を1  $\mu$ m以下、好ましくは10~200 nmの範囲の膜厚になるように蒸着やスパッタリング等の方法により形成して、陽極を作製する。次に、この陽極上に正孔注入層を設ける。正孔注入層の形成は、前述したように真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法等の方法により行なうことができるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが発生しにくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。

真空蒸着法により正孔注入層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物(正孔注入層の材料)、目的とする正孔注入層の結晶構造や再結合構造等により異なるが、一般に蒸着源温度50~450℃、真空度 $10^{-7}$ ~ $10^{-3}$  torr、蒸着速度0.01~50 nm/sec、基板温度-50~300℃、膜厚5 nm~5  $\mu$ mの範囲で適宜選択することが好ましい。

【0076】次に正孔注入層上に発光層を設ける発光層の形成も、所望の有機発光材料を用いて、真空蒸着法、スパッタリング、スピコート法、キャスト法等の方法により有機発光材料を薄膜化することにより形成できるが、均質な膜が得られやすく、かつピンホールが生成しにくい等の点から、真空蒸着法により形成することが好ましい。真空蒸着法により発光層を形成する場合、その蒸着条件は、使用する化合物により異なるが、一般的に正孔注入層と同じ様な条件範囲の中から選択することができる。

【0077】次に、この発光層上に電子注入層を設ける。正孔注入層、発光層と同様、均質な膜を得る必要から真空蒸着法により形成することが好ましい。蒸着条件は、正孔注入層、発光層と同様条件範囲から選択することができる。

【0078】最後に、陰極を積層して有機EL素子を得ることができる。陰極は、金属から構成されるもので、蒸着法、スパッタリングを用いることができる。しかし、下地の有機物層を成膜時の損傷から守るためには、真空蒸着法が好ましい。

【0079】これまで記載してきた有機EL素子の作製は、一回の真空引きで一貫して陽極から陰極まで作製することが好ましい。

【0080】なお、有機EL素子に直流電圧を印加する場合、陽極を+、陰極を-の極性にして、5~40 Vの電圧を印加すると、発光が観測できる。また、逆の極性



で電圧を印加しても電流は流れず、発光は全く生じない。さらに交流電圧を印加した場合には、陽極が+、陰極が-の極性になったときのみ均一な発光が観測される。印加する交流の波形は任意でよい。

【0081】ここで、平面的に分離配置して発光する有機EL素子を作製するには、ストライプ状の陽極および陰極を交差させ、それぞれの電極に直流電圧を印加し、交差部分を発光させる（X-Yドットマトリックス方式）のが一般的である。ストライプ状の陽極および陰極はフォトリソグラフィ法にてエッチングするかリフトオフするか、またはマスキング蒸着等の方法にて形成することができる。

#### 【0082】⑤封止部材

封止部材としては、有機EL多色発光表示装置の表示領域を覆うように配置されておればよく、凹板状でも、平板状でもよい。また、透明性、電気絶縁性を特に問わない。具体的には、ガラス板、ポリマー板、金属板等が挙げられる。ガラス板としては、特にソーダ石灰ガラス、バリウム・ストロンチウム含有ガラス、鉛ガラス、アルミノケイ酸ガラス、ホウケイ酸ガラス、バリウムホウケイ酸ガラス、石英等を挙げることができる。また、ポリマー板としては、ポリカーボネート、アクリル、ポリエチレンテレフタレート、ポリエーテルサルファイド、ポリサルフォン等を挙げることができる。金属板としては、ステンレス、鉄、銅、アルミニウム、マグネシウム、ニッケル、亜鉛、クロム、チタン、モリブデン、シリコン、ゲルマニウムおよびタンタルからなる群から選ばれる一種以上の金属または合金からなるものが挙げられる。中でも、ガラス板が化学的な安定性、および外気をほぼ完全に遮断することができるので、好ましい。なお、封止部材を凹状に加工するのは、サンドブラスト加工、化学エッチング加工等が使われる。次に、封止部材と、電極、透光性基板、平坦化層とを接着させるためには以下のような接着剤を用いることができる。具体的には、アクリル酸系オリゴマー、メタクリル酸系オリゴマーの反応性ビニル基を有する光硬化および熱硬化型接着剤、2-シアノアクリル酸エステルなどの湿気硬化型等の接着剤を挙げることができる。また、エポキシ系などの熱および化学硬化型（二液混合）を挙げることができる。また、前記接着剤中に乾燥剤を分散させておいてもよい。次に、封止部材と有機EL多色発光表示装置の表示領域との間隙には、気相および液相では、窒素、アルゴン等の不活性気体や、フッ化炭化水素、シリコンオイルのような不活性液体を注入することが好ましい。また、真空とすることも可能である。また、固相では、酸化アルミニウム、硫酸マグネシウム等の乾燥剤を注入してもよい。不活性液体や不活性気体または乾燥剤は、接着剤または封止部材に注入口をあらかじめ作製しておき、その注入口から注入する。最終的には注入口を封鎖して封止を完成させる。

#### 【0083】

【実施例】以下、本発明を実施例によってさらに具体的に説明する。

【実施例1】透光性基板として100mm×100mm×1.1mm厚のガラス基板（コーニング7059）上に、3重量%（対固形分）のカーボンブラックを分散したアクリレート系光硬化型レジスト（粘度250cps）を、スピコートし、80℃でベーク後、高圧水銀灯を光源とする露光機にセットした。次いで、50μmライン、250μmギャップのストライプ上で、領域が70mm×70mmのパターンが得られるマスクを介して、900mJ/cm<sup>2</sup>（365nm）で露光した。次に、1重量%炭酸ナトリウム水溶液で室温現像後、基板のガラス面から3000mJ/cm<sup>2</sup>で全面露光してから200℃でベークして遮光層のパターンを形成した。遮光層の膜厚は、15μmであった。次に、基板をスクリーン印刷機にセットし、250μmライン650μmギャップのストライプ状のパターンが得られる版を用いて、2.8重量%（対固形分）の銅フタロシアニン系顔料（C. I. ピグメントブルー15:6）と0.2重量%（対固形分）のジオキサジン系顔料（C. I. ピグメントバイオレット23）をバインダー樹脂としてポリ塩化ビニル樹脂（重量平均分子量2万）、溶剤としてシクロヘキサノン中に分散したインキ（粘度8000cps）を遮光層のパターンの空隙中に印刷し、80℃でベークして、青色カラーフィルタ層のパターンを得た。青色カラーフィルタ層の膜厚は15μm前後であった。次に、版を青色カラーフィルタ層のパターンのストライプ配列に対して垂直方向へ300μm平行移動して、クマリン6と、バインダー樹脂としてのポリ塩化ビニル樹脂（重量平均分子量2万）とを、クマリン6の配合量をポリ塩化ビニル樹脂1kgに対し0.03molとなるようにして、溶剤としてのシクロヘキサノン中に溶解したインキ（粘度8000cps）を遮光層パターンの別の空隙中に印刷し、80℃でベークして、蛍光体層Aのパターンを得た。蛍光体層Aの膜厚は15μm前後であった。次に、版を蛍光体層Aのパターンのストライプ配列に対してさらに垂直方向へ300μm平行移動して、クマリン6と、4重量%（対ベンゾグアナミン樹脂）のローダミン6Gと4重量%（対ベンゾグアナミン樹脂）のローダミンBをベンゾグアナミン樹脂中に練り込んだ蛍光顔料と、バインダー樹脂としてのポリ塩化ビニル樹脂（重量平均分子量2万）とを、クマリン6の配合量を、ローダミン6GおよびローダミンBをベンゾグアナミン樹脂中に練り込んだ蛍光顔料とポリ塩化ビニル樹脂との合計量1kgに対し0.03mol、蛍光顔料の配合量を30重量%、並びにポリ塩化ビニル樹脂の配合量を70重量%となるようにして、これらを溶剤としてのシクロヘキサノンに溶解したインキ（粘度8000cps）を遮光層パターンのさらに別の空隙中に印刷し、80℃

でベークして、蛍光体層Bのパターンを得た。蛍光体層Bの膜厚は $15\mu\text{m}$ 前後であった。以上より、色変換層を作製し、表面粗さ計(DEKTA3030)で色変換層の表面凹凸を測定すると、 $1.2\mu\text{m}$ であった。なお、後で積層する有機EL素子の発光輝度および色度を確認するため、ごく一部の色変換層を削っておいた。次に、有機EL素子の作製を行った。まず、基板を $160^\circ\text{C}$ に加熱し $10^{-6}\text{torr}$ の真空度にて、色変換層上にスパッタリングにより $0.15\mu\text{m}$ 膜厚、表面抵抗 $20\Omega/\square$ のITO(インジウム錫酸化物)の透明電極(陽極および陰極の取出電極)を成膜した。次に、ポジ型のフォトリソ(富士ハントエレクトロニクステクノロジー社製HPR204)をITO上にスピコートし、 $80^\circ\text{C}$ でベークした後、露光機にて、 $250\mu\text{m}$ ライン、 $50\mu\text{m}$ ギャップのストライプ状の陽極用ITOパターンおよび、 $600\mu\text{m}$ ライン、 $100\mu\text{m}$ ギャップのストライプ状の陰極の取出電極用ITOパターンが得られるマスクを介し、遮光層パターンに位置合わせして、 $100\text{mJ}/\text{cm}^2$ で露光した。次に、 $2.38\%$  TMAH(テトラメチルアンモニウムヒドロキシド)水溶液にてレジストを現像し、 $120^\circ\text{C}$ にてポストベークし、レジストパターンを形成した。次に、基板を室温の $47\%$ 臭化水素酸水溶液に浸漬して、ITOの露出している部分をエッチングし、レジストを剥離剤(長瀬産業社製N303)で剥離して、ITOパターンを形成した。次に、この基板をIPA洗浄、UV洗浄した後、蒸着装置(日本真空技術社製)の基板ホルダーに固定した。蒸着源は、モリブテン製の抵抗加熱ボートに正孔注入材料としてMTDATAおよびNPD、発光材料としてDPVBi、ドーパントとしてDPAVB、電子注入材料としてAlqをそれぞれ仕込み、陰極の第二金属としてAgをタングステン製フィラメントに、陰極の電子注入性金属としてMgをモリブテン製ボートに装着した。その後、真空槽を $5\times 10^{-7}\text{torr}$ まで減圧後、以下の順序で順次積層していった。正孔注入層から陰極まで途中で真空を破らず一回の真空引きでおこなった。まず正孔注入層としては、MTDATAを蒸着速度 $0.1\sim 0.3\text{nm}/\text{s}$ 、膜厚 $200\text{nm}$ 、NPDを蒸着速度 $0.1\sim 0.3\text{nm}/\text{s}$ 、膜厚 $20\text{nm}$ 、発光層としてはDPVBiを蒸着速度 $0.1\sim 0.3\text{nm}/\text{s}$ 、DPAVBを蒸着速度 $0.05\text{nm}/\text{s}$ で同時蒸着して併せて膜厚 $40\text{nm}$ (ホスト材料に対するドーパントの重量比は $1.2\sim 1.6$ )とし、電子注入層としては、Alqを蒸着速度 $0.1\sim 0.3\text{nm}/\text{s}$ 、膜厚 $20\text{nm}$ 、陰極としては、陽極ITOストライプパターンに対し垂直とし、取出電極用ITOパターンと接続し、 $600\mu\text{m}$ ライン、 $100\mu\text{m}$ ギャップのストライプパターンになるようなマスクを介して、MgとAgを同時蒸着した。すなわち、Mgは、蒸着速度 $1.3\sim 1.4\text{nm}/\text{s}$ 、Agは蒸着速度 $0.1\text{nm}/\text{s}$ で膜厚を $200\text{nm}$

mとした。このようにして、有機EL素子を色変換層上に積層した。次に、直流 $8\text{V}$ の電圧を陽極と陰極に印加すると、電圧を印加した陽極と陰極の交差部分が発光し、色変換層を削った部分から見える有機EL素子の発光輝度およびCIE色度座標(JIS Z 8701)はそれぞれ $100\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.16$ 、 $y=0.24$ で青色の発光が得られることを確認した。また、青色カラーフィルタから見える光の発光輝度は、 $50\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.14$ 、 $y=0.16$ で色純度の高い青色の発光がでていることを確認した。一方、蛍光体層Aから見える光の発光輝度は、 $113\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.23$ 、 $y=0.65$ で黄味がかった緑色(イエロイッシュグリーン)の発光がでていることを確認した。また、蛍光体層Bから見える光の発光輝度は、 $22\text{cd}/\text{m}^2$ 、色度は $x=0.55$ 、 $y=0.29$ で赤色の発光がでていることを確認した。また、表示領域に、 $50\mu\text{m}$ 径以上の非発光領域は存在しなかった。このようにして、得られた有機EL多色発光表示装置の表示領域は $70\text{mm}\times 70\text{mm}\square$ であり、次に、ガラス基板(コーニング7059)の封止部材を準備した。この封止部材は、サンドブラスト処理により、凹状に加工されており、外寸法が $80\text{mm}\times 80\text{mm}\square$ 、内寸法が $76\text{mm}\times 76\text{mm}$ 、厚さが $1.1\text{mm}$ 、凹部の深さが $0.5\text{mm}$ にした。また、不活性物質の注入用に凹部の隅に $1\text{mm}$ 径のスルーホールを形成しておいた。次に、窒素気流下のドライボックス中にて、この封止部材の周囲の凸の部分にエポキシ系二液混合型接着剤(CIBA-GEIGY社製アララダイト)を薄く塗布し、表示領域を覆うように封止部材をかぶせ、封止部材の凸部と透光性基板表面および陽極、陰極の取出電極表面を接着させた。次に、封止部材のスルーホールから不活性液体の弗化炭化水素(米国3M社製フロリナート)を注入して、封止部材と表示領域の間隙を埋めた。最後に、スルーホールの周辺に前記接着剤を薄く塗布し、前記ガラス基板の小片を接着させて、封止を完了した。以上のようにして、有機EL多色発光装置を作製し(図1:構成A)、封止前と同一の多色発光表示状態であり、若干のクロストーク(色変換層の凹凸の影響による陽極と陰極の短絡が原因による所望発光部分以外の部分の発光)と、色変換層の周縁部の段差のため、2~3本の表示領域の周辺部の陽極または陰極の断線はあったが、概ね良好な表示ができることを確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、 $50\mu\text{m}$ 径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0084】[実施例2] 実施例1と同一の条件で色変換層を形成した。次に、平坦化層として、アクリル系の光硬化および熱硬化型樹脂(新日鉄化学社製V259PA)を色変換層上にスピコートし、 $80^\circ\text{C}$ でベーク

後、色変換層を覆うようなパターン（72mm×72mm□）が得られるマスクを前記樹脂上に密着させて、300mJ/cm<sup>2</sup>で露光した。次に、0.1重量%の炭酸ナトリウム水溶液で現像して非露光部を除去し、160℃でベークした。得られた平坦化層の膜厚は5μmで、表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、色変換層の周縁部の段差は緩和された。また、平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.85重量%であった。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置（図2：構成B）を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。ただし、色変換層の周縁部の段差は平坦化層で緩和されたが、平坦化層の周縁部の段差があるため、2～3本の陽極または陰極の断線はあったが、概ね良好な表示ができることを確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0085】〔実施例3〕実施例1と同一の条件で色変換層を形成した。次に、平坦化層として、アクリル系の光硬化および熱硬化型樹脂（新日鉄化学社製V259PA）を色変換層上にスピコートし、80℃でベーク後、色変換層を覆うようなパターン（72mm×72mm□）が得られるマスクを前記樹脂上から1.0mmギャップをとって、300mJ/cm<sup>2</sup>で露光した。次に、0.1重量%の炭酸ナトリウム水溶液で現像して非露光部を除去し、160℃でベークした。得られた平坦化層の膜厚は5μmで、表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、色変換層の周縁部の段差は緩和された。さらに、平坦化層の周縁部は、周縁部に向けて漸次傾斜していることを顕微鏡にて確認した。また、平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.85重量%であった。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置（図4：構成D）を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、平坦化層の周縁部を周縁部側に傾斜させたので、陽極または陰極の断線はなく良好な表示を確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0086】〔実施例4〕実施例1と同一の条件で色変換層を形成した。次に、平坦化層として、環状オレフィン系の熱硬化型樹脂（日本ゼオン社製ZME1410）を色変換層上にスピコートし、80℃でベークした。次に、ネガ型のフォトレジスト（日本ゼオン社製ZPN1100）をスピコートし、80℃でベーク後、色変

換層を覆うようなパターン（72mm×72mm□）が得られるマスクを前記樹脂上に密着させて、80mJ/cm<sup>2</sup>で露光し、さらに110℃でベークした。次に、2.38重量%のテトラメチルアンモニウムヒドロキシド水溶液で現像して非露光部を除去し、露光した平坦化層を、α-ピネンにてオーバーエッチング気味にエッチングし、フォトレジストを剥離液（長瀬産業社製N303）で剥離し、160℃でベークした。得られた平坦化層の膜厚は5μmで、表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、色変換層の周縁部の段差は緩和された。さらに、平坦化層の周縁部は、周縁部に向けて漸次傾斜していることを顕微鏡にて確認した。また、平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.05重量%であり、かつ、JIS Z0208の方法にて、水蒸気または酸素のガス透過係数は、10<sup>-12</sup>cc・cm/cm<sup>2</sup>・s・cmHg以下であることを確認した。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置（図4：構成D）を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、平坦化層の周縁部を周縁部側に傾斜させたので、表示領域の周辺部の陽極または陰極の断線はなく良好な表示を確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。さらに、1ヶ月後においても封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0087】〔実施例5〕実施例1と同一の条件で色変換層を形成した。次に、平坦化層として、アクリル系の光硬化および熱硬化型樹脂（新日鉄化学社製V259PA）を色変換層上にスピコートし、80℃でベーク後160℃でベークした。得られた平坦化層の膜厚は5μmで、表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、色変換層の周縁部の段差は緩和された。また、平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.85重量%であった。以下、封止部材の凸部と平坦化層表面および陽極、陰極の取出電極表面を接着させたこと以外は実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置（図3：構成C）を作製した。その結果、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、陰極または陰極の断線はほとんどなく良好な表示ができることを確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0088】〔実施例6〕実施例1と同一の条件で色変

換層を形成した。次に、平坦化層として、環状オレフィン系の熱硬化型樹脂（日本ゼオン社製ZME1410）を色変換層上にスピコートし、80℃でベークし、さらに、160℃でベークした。得られた色変換層の表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、色変換層の周縁部の段差も緩和された。また、平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.05重量%であり、かつ、JIS Z0208の方法にて、水蒸気または酸素のガス透過係数は、 $10^{-12} \text{ cc} \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg}$ 以下であることを確認した。以下、封止部材の凸部と平坦化層表面および陽極、陰極の取出電極表面を接着させたこと以外は実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置（図3：構成C）を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、陽極または陰極の断線はなく良好な表示ができることを確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。さらに、1ヶ月後においても封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0089】[実施例7] 実施例1と同一の条件で色変換層を形成した。次に、平坦化層として、アクリル系の光硬化および熱硬化型樹脂（新日鉄社製V259PA）中に30重量%（対固形分）の乾燥させた酸化ケイ素（シリカゲル）を分散した樹脂を色変換層上にスピコートし、80℃でベーク後、色変換層を覆うようなパターン（72mm×72mm□）が得られるマスクを前記樹脂上に、1.0mmギャップをとって、300mJ/cm<sup>2</sup>で露光した。次に、0.1重量%の炭酸ナトリウム水溶液で現像して非露光部を除去し、160℃でベークした。得られた平坦化層の膜厚は5μmで、表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、色変換層の周縁部の段差も緩和された。さらに、平坦化層の周縁部は、周縁部に向けて漸次傾斜していることを顕微鏡にて確認した。また、平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.10重量%であった。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置（図4：構成D）を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、平坦化層の周縁部を周縁部側に傾斜させたので、陽極または陰極の断線はなく良好な表示を確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。さらに、1ヶ月後、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないこ

とを確認した。

【0090】[実施例8] 実施例3と同一の条件で平坦化層を形成した。さらに、第二の平坦化層として、基板を100℃で加熱し、 $10^{-6} \text{ torr}$ の真空度とし、先の平坦化層を覆うようなパターン（73mm×73mm□）が得られるマスクを前記樹脂上から0.5mmギャップをとって、酸化ケイ素をスパッタリングした。膜厚は0.5μmであった。第二の平坦化層の表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、この平坦化層の周縁部は、周縁部に向けて漸次傾斜していることを顕微鏡にて確認した。また、第二の平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.01重量%以下であり、かつ、JIS Z0208の方法にて、水蒸気または酸素のガス透過係数は、 $10^{-13} \text{ cc} \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg}$ 以下であることを確認した。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置（図4：構成D）を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、平坦化層の周縁部を周縁部側に傾斜させたので、陽極または陰極の断線はなく良好な表示を確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。さらに、1ヶ月後、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0091】[実施例9] 実施例5と同一の条件で平坦化層を形成した。さらに、第二の平坦化層として、基板を100℃で加熱し、 $10^{-6} \text{ torr}$ の真空度とし、平坦化層上の全面に酸化ケイ素をスパッタリングした。膜厚は0.5μmであった。第二の平坦化層の表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化された。また、第二の平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.01重量%以下であり、かつ、JIS Z0208の方法にて、水蒸気または酸素のガス透過係数は、 $10^{-13} \text{ cc} \cdot \text{cm} / \text{cm}^2 \cdot \text{s} \cdot \text{cmHg}$ 以下であることを確認した。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置（図3：構成C）を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、陽極または陰極の断線はなく良好な表示を確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。さらに、1ヶ月後、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0092】[実施例10] 実施例3と同一の条件で平坦化層を形成した。さらに、第二の平坦化層として、基

板を100℃で加熱し、 $10^{-6}$  torrの真空度とし、先の平坦化層を覆うようなパターン(73mm×73mm□)が得られるマスクを前記樹脂上から1.0mmギャップをとって、酸化アルミニウムをスパッタリングした。膜厚は0.5μmであった。第二の平坦化層の表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、この平坦化層の周縁部は、周縁部に向けて漸次傾斜していることを顕微鏡にて確認した。また、第二の平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.01重量%以下であり、かつ、JIS Z0208の方法にて、水蒸気または酸素のガス透過係数は、 $10^{-13}$  cc・cm/cm<sup>2</sup>・s・cmHg以下であることを確認した。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置(図4:構成D)を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、平坦化層の周縁部を周縁部側に傾斜させたので、陽極または陰極の断線はなく良好な表示を確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。さらに、1ヶ月後、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0093】[実施例11] 実施例3と同一の条件で平坦化層を形成した。さらに、第二の平坦化層として、基板を100℃で加熱し、 $10^{-6}$  torrの真空度とし、先の平坦化層を覆うようなパターン(73mm×73mm□)が得られるマスクを前記樹脂上から0.5mmギャップをとって、酸化チタンをスパッタリングした。膜厚は0.5μmであった。第二の平坦化層の表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、この平坦化層の周縁部は、周縁部に向けて漸次傾斜していることを顕微鏡にて確認した。また、第二の平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.01重量%以下であり、かつ、JIS Z0208の方法にて、水蒸気または酸素のガス透過係数は、 $10^{-13}$  cc・cm/cm<sup>2</sup>・s・cmHg以下であることを確認した。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置(図4:構成D)を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、平坦化層の周縁部を周縁部側に傾斜させたので、陽極または陰極の断線はなく良好な表示を確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。さらに、1ヶ月後、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0094】[実施例12] 実施例3と同一の条件で平坦化層を形成した。さらに、基板を加熱せず、 $10^{-6}$  torrの真空度とし、先の平坦化層および透光性基板全面上に、アルミニウムを蒸着した。膜厚は0.2μmであった。次に、0.1mol/lの酒石酸アンモニウム水溶液とエチレングリコールを1:9の容量比で混合し、それに少量のアンモニア水溶液を添加して、pHを7.0に調節した化成液を調製し、アルミニウム成膜基板を陽極に、白金メッシュを陰極として化成液に浸漬して、アルミニウムの陽極酸化を行った。陽極酸化は、電圧を200Vまで1mA/cm<sup>2</sup>の定電流制御しつつ徐々に印加し、化成液の温度は、40~50℃に保った。電流がほとんど流れなくなったことを確認してから、基板を化成液から引き上げ、エチレングリコールおよび純水にて洗浄後、160℃でバークした。このようにして、アルミニウムの陽極酸化膜すなわち、酸化アルミニウムの第二の平坦化層を形成した。第二の平坦化層の表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、この平坦化層の周縁部は、周縁部に向けて漸次傾斜していることを顕微鏡にて確認した。また、第二の平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、0.01重量%以下であり、かつ、JIS Z0208の方法にて、水蒸気または酸素のガス透過係数は、 $10^{-13}$  cc・cm/cm<sup>2</sup>・s・cmHg以下であることを確認した。以下、実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置(図3:構成C)を作製し、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、平坦化層の周縁部を周縁部側に傾斜させたので、陽極または陰極の断線はなく良好な表示を確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。さらに、1ヶ月後、封止直後と同一の発光状態であり、50μm径以上の非発光領域が存在しないことを確認した。

【0095】[比較例1] 実施例1と同一の条件で色変換層を形成した。次に、平坦化層として20重量%ポリビニルアルコール(重合度1500)の水溶液を色変換層上にスピコートし、80℃でバーク後、120℃でバークした。得られた平坦化層の膜厚は5μmで、表面凹凸は、0.5μm以下に平坦化され、色変換部の周縁部の段差は緩和された。ただし、平坦化層の水分含有量を熱分析にて測定すると、5重量%であり、かつ、JIS Z0208の方法にて、水蒸気または酸素のガス透過係数は、 $10^{-12}$  cc・cm/cm<sup>2</sup>・s・cmHgを超えて大きいことを確認した。以下、封止部材の凸部と平坦化層表面および陽極、陰極の取出電極表面を接着させたこと以外は実施例1と同一の条件で、有機EL多色発光表示装置(図3:構成C)を作製した。その結

果、実施例1と同一の多色発光表示状態であったが、色変換層の表面凹凸を平坦化層で緩和したので、クロストークはほとんど発生しなかった。また、陽極または陰極の断線はなく良好な表示ができることを確認した後、常温常湿の大気中にて保存した。14日後、再びこの有機EL多色発光表示装置を発光させたが、封止直後と同一の発光状態が得られず、 $50\mu\text{m}$ 径以上の非発光領域が多発した。これは、平坦化層の水分含有量が1.0重量%を超え、水蒸気または酸素のガス透過係数は、 $10^{-12}\text{cc}\cdot\text{cm}/\text{cm}^2\cdot\text{s}\cdot\text{cmHg}$ を超えて大きいため、平坦化層中の水分および大気中の水分、および酸素が平坦化層を介して有機EL多色発光表示装置（特に有機EL素子）の表示領域に侵入したためと考えられる。

【0096】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によって、水分や酸素の影響を受けにくく、保存安定性に優れた有機EL多色発光表示装置を提供することができるとともに、電極の断線が少なく、また、駆動回路との接続が容易な有機EL多色発光表示装置を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施の形態の構成Aを模式的にし、(A)は断面図、(B)は平面図である。

【図2】本発明の実施の形態の構成Bを模式的に示す断面図である。

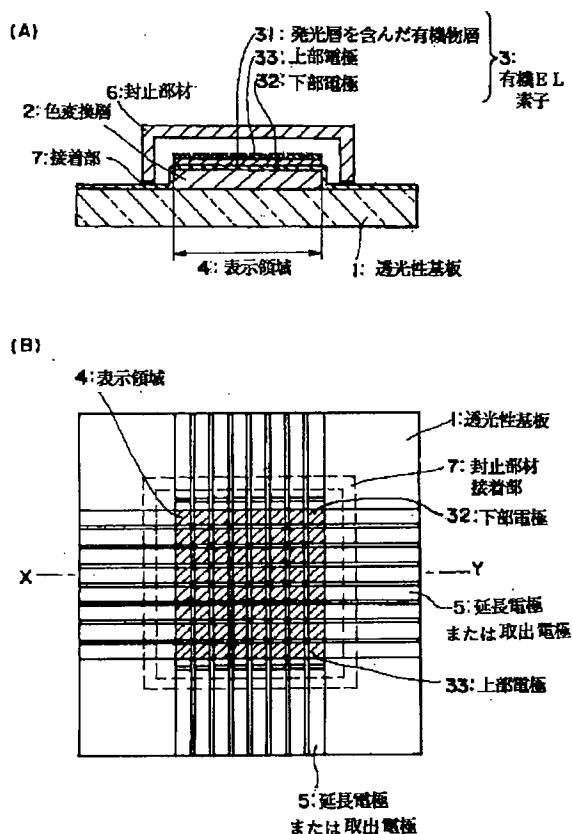
【図3】本発明の実施の形態の構成Cを模式的に示す断面図である。

【図4】本発明の実施の形態の構成Dを模式的に示す断面図である。

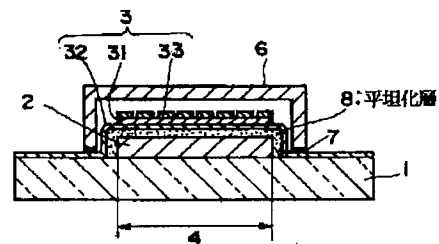
【符号の説明】

- 1 透光性基板
- 2 色変換層
- 3 有機EL素子
- 31 発光層を含む有機物層
- 32 下部電極
- 33 上部電極
- 4 表示領域
- 5 延長電極または取出電極
- 6 封止部材
- 7 接着部
- 8 平坦化層
- 9 傾斜部

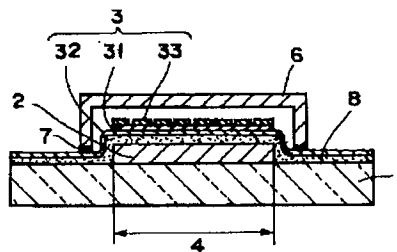
【図1】



【図2】



【図3】



【図 4】

